

# 3  
BT  
5-16-02

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

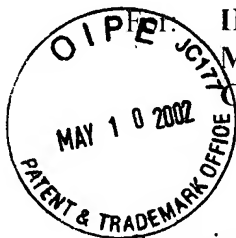
In re application of: **Hisakazu HOJO, et al.**

Serial No.: **10/046,277**

Group Art Unit: **1761**

Filed: **January 16, 2002**

P.T.O. Confirmation No.: **2379**



**INORGANIC PARTICLES-CONTAINING ADDITIVE COMPOSITION,  
MANUFACTURING METHOD THEREOF AND FOOD COMPOSITION  
CONTAINING THE ADDITIVE COMPOSITION**

**CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**

Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Date: May 10, 2002

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

**Japanese Appln. No. 2001-317872, filed October 16, 2001**

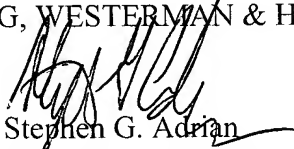
In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of said certified copy.

In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 01-2340.

Respectfully Submitted,

ARMSTRONG, WESTERMAN & HATTORI, LLP

  
Stephen G. Adrian  
Attorney for Applicants  
Reg. No. 32,878

SGA/jaz  
Atty. Docket No. **020048**  
Suite 1000, 1725 K Street, N.W.  
Washington, D.C. 20006  
(202) 659-2930



**23850**

PATENT TRADEMARK OFFICE

**RECEIVED**  
MAY 10 2002  
**TC 1700**



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年10月16日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-317872

[ ST.10/C ]:

[ JP 2001-317872 ]

出 願 人

Applicant(s):

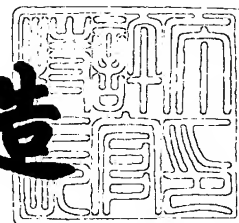
丸尾カルシウム株式会社

RECEIVED  
MAY 13 2002  
TC 1700

2002年 1月29日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2002-3002107

【書類名】 特許願

【整理番号】 01X16-1002

【提出日】 平成13年10月16日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A23L 1/304

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県明石市魚住町西岡 1 4 5 5 番地 丸尾カルシウム株式会社内

【氏名】 北条 壽一

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県明石市魚住町西岡 1 4 5 5 番地 丸尾カルシウム株式会社内

【氏名】 久保田 直樹

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県明石市魚住町西岡 1 4 5 5 番地 丸尾カルシウム株式会社内

【氏名】 森崎 義政

【特許出願人】

【識別番号】 390008442

【氏名又は名称】 丸尾カルシウム株式会社

【代理人】

【識別番号】 100076820

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊丹 健次

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 012623

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

特 2 0 0 1 - 3 1 7 8 7 2

【物件名】	要約書	1
【プルーフの要否】	要	

【書類名】 明細書

【発明の名称】 無機粒子含有添加剤組成物、その製造方法、及び該添加剤組成物を含有してなる食品組成物

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記（a）及び（b）の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤組成物。

（a） $70 \leq X \leq 90000$

X：無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量（mg/kg）

（b） $0.1 \leq Y \leq 15$

Y：無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度10重量％に調製した時の電気伝導度（mS/cm）。

【請求項2】 下記（c）及び（d）の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤組成物。

（c） $70 \leq X \leq 39000$

X：無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量（mg/kg）

（d） $0.1 \leq Y \leq 7$

Y：無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度10重量％に調製した時の電気伝導度（mS/cm）。

【請求項3】 下記（e）及び（f）の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤組成物。

（e） $150 \leq X \leq 10000$

X：無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量（mg/kg）

（f） $0.25 \leq Y \leq 1.8$

Y : 無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 (m S / c m) 。

【請求項 4】 下記 (I) ~ (IV) から選ばれた方法により調製された、リン酸カルシウム、リン酸マグネシウム、リン酸鉄から選ばれた少なくとも 1 種のリン酸化合物を主成分とする多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する組成物からなり、下記 (a) 及び (b) の要件を具備することを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物。

(I) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びアルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源を添加する。

(II) 水と多価金属化合物と、リン酸源及びアルカリ金属源、又は、リン酸源・アルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にカルボキシル基を有する有機酸を添加する。

(III) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源・アルカリ金属源を添加する。

(IV) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びリン酸源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にアルカリ金属源を添加する。

(a)  $70 \leq X \leq 90000$

X : 無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量 (m g / k g)

(b)  $0.1 \leq Y \leq 15$

Y : 無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 (m S / c m) 。

【請求項 5】 請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の無機粒子含有添加剤組成物の固形分 1 0 0 重量部に対し、乳化安定剤を 2 ~ 8 0 重量部含有させてなる無機粒子含有添加剤組成物。

【請求項 6】 無機粒子含有添加剤組成物の粒度分布における重量平均径 K ( $\mu m$ ) が、 $0.02 \leq K \leq 0.8$  である請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の無機粒子含有添加剤組成物。

【請求項 7】 無機粒子含有添加剤組成物が、食品用無機粒子含有添加剤組

成物である請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の無機粒子含有添加剤組成物。

【請求項 8】 下記 (I) ～ (IV) から選ばれた方法により、少なくとも 1 種のリン酸化合物を主成分する多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有するスラリーを調製し、次いで該スラリーを洗浄することを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物の製造方法。

(I) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びアルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源を添加する。

(II) 水と多価金属化合物と、リン酸源及びアルカリ金属源、又は、リン酸源・アルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にカルボキシル基を有する有機酸を添加する。

(III) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源・アルカリ金属源を添加する。

(IV) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びリン酸源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にアルカリ金属源を添加する。

【請求項 9】 請求項 8 記載の方法で調製した無機粒子含有添加剤組成物の固形分 1 0 0 重量部に対し、乳化安定剤を 2 ～ 8 0 重量部含有させることを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物の製造方法。

【請求項 1 0】 請求項 9 記載の方法において、乳化安定剤を含有させた後、粉碎機及び／または分散機を用いて分散させることを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物の製造方法。

【請求項 1 1】 請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の無機粒子含有添加剤組成物を含有してなることを特徴とする食品組成物。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

本発明は、無機粒子含有添加剤組成物、その製造方法及び該添加剤組成物を含有してなる食品組成物に関し、特に、ヨーグルト、牛乳、ジュース、コーヒーフレッシュ、ミルク粉末、菓子等の食品に添加してミネラルを強化するのに有効に利用される、分散安定性が極めて良好で、且つ、風味が良好である無機粒子含有

添加剤組成物、及びその製造方法、並びに該添加剤組成物を含有してなる食品組成物に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

近年、カルシウム、マグネシウム及び鉄等の摂取量の不足が指摘されており、この傾向は、特に育ち盛りの子供及び老人において顕著である。

カルシウムは骨の形成に重要であるのはもちろんであるが、さらに筋肉の収縮、生体内の恒常性の維持に重要な役割を果たしている。また、マグネシウムには、筋肉、血管を弛緩、拡張する作用等があり、人間にとって必要不可欠なミネラルである。マグネシウムが欠乏した場合、高血圧、狭心症、高脂血症等になり易いと考えられている。また、マグネシウムは、カルシウムの代謝に大きな関わりを持っており、不足するとカルシウムの代謝異常に伴う諸症状が現れる。さらに、マグネシウムは多くの酵素反応に関わり、生体内の恒常性を維持していると言われている。

## 【0003】

しかしながら、近年、食生活の欧風化や精白度の高い穀物を取るようになり、マグネシウムは食品の精製加工の段階で大幅に減少するため、現代人の食生活では不足しがちな状況にあり、マグネシウムを強化した商品に注目が集まっている。更に近年、鉄分不足による貧血症状を起こす女性が多数見られる。この傾向は、女子高生や若い成人女性において特に顕著である。この鉄欠乏性貧血の原因としては、食生活に由来する点が最も大きいが、女性の場合は、生理的な出血、妊娠による鉄需要の増加、及びダイエットによる摂取不足等、鉄不足による貧血になり易い環境下にあり、一般的に約半数の女性は鉄が不足していると言われている。この鉄不足を解消するために、鉄分強化食品が販売される様になってきており、牛乳、清涼飲料水等に鉄分を強化した商品も多数販売され始めている。

## 【0004】

これら各種ミネラル摂取量の不足を解消するため、ミネラル強化食品が販売されるようになってきており、一般的にミネラルの含有量が多いとされている牛乳においても、さらにミネラルを添加してミネラル強化牛乳として提供することが



試みられており、その他、ジュース、ミルク粉末類にもミネラル強化した商品も多数販売され始めている。

例えば牛乳、ヨーグルトにおいては、ミネラルを強化する目的で、乳酸カルシウム、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、クエン酸鉄アンモニウム等の水溶性の無機又は有機酸形態のミネラル、炭酸カルシウム、リン酸カルシウム、ドロマイト、ピロリン酸第二鉄等の水不溶性の無機形態のミネラルが添加され使用されている。しかしながら、水溶性の無機又は有機酸形態のミネラルは、牛乳、ヨーグルト中のタンパク質の安定性を阻害しやすく、一定量以上の配合が困難なため、ミネラル原料として多量に使用することができないという欠点を有していた。また、独特の苦みを有するため味にも問題があった。

#### 【0005】

一方、水不溶性の無機形態のミネラルは、水不溶性のため牛乳、ヨーグルト中のタンパク質の安定性を阻害することがないため、添加量の観点からは多量に用いることが可能であるものの、該無機形態のミネラルは全般に比重が2.1以上と高く、牛乳中へ分散させた場合短時間で沈澱するため、食品としての美観上好ましくなく、結局、その添加量は制限され多量に使用することができないという欠点を有していた。

#### 【0006】

この欠点を補い食品用途に多量のカルシウムを添加することの可能な方法については、数多くの提案がなされており、例えば、特開平9-9911号公報には、リン脂質及びタンパク分解物からなる群から選ばれる少なくとも1種類を炭酸カルシウムに添加し、湿式粉碎を行い分散性を改良する方法が提案されている。しかしながら、上記の様にリン脂質やタンパク分解物を添加する方法では、リン脂質に特有の臭気と苦みがあるため、風味の面で問題が大きい上、該公報によると平均粒子径的に1~3 $\mu$ mのカルシウム分散液であるため、この方法により得られる炭酸カルシウムを添加した牛乳は、その製造工程中におけるクラリファイヤー等の遠心分級機における炭酸カルシウムの歩留まりが悪く、また牛乳等の食品中において沈降しやすく、ロングライフ牛乳等の長期間保存可能食品への添加用途には良好とはいえなかった。

## 【0007】

また、特開昭55-84327号公報には、(1)カルシウム、マグネシウム、鉄、銅、ホウ素、亜鉛、マンガン、モリブデン、ヒ素、銀、アルミニウム、バリウム、ビスマス、水銀、ニッケル、鉛、白金、アンチモン及び錫から選ばれる陽イオン供給源、(2)リン酸カリウム、リン酸水素二カリウム、水酸化アルカリ金属とリン酸との混合物、及びリン酸水素アルカリ金属から選ばれるリン酸アルカリ供給源及び(3)少なくとも3個以上のカルボキシル基を有する有機酸を陽イオン供給源、リン酸アルカリ供給源の順に混合し、最後に有機酸源を添加してミネラル強化物質を得る方法が提案されている。

## 【0008】

しかしながら、この方法で作成した食品添加剤組成物の分散状態は、該公報によれば各種ミネラルの有効利用率は必ずしも十分なものとは言えず、この方法で得られた食品添加剤組成物を添加した牛乳では特開平9-9911号公報と同様、その製造工程中におけるクラリファイヤー等の遠心分級機における各種ミネラルの歩留まりが悪く、また、牛乳等の食品中において沈降し易く、長期間保存可能食品への添加が可能な物性を有しているとは言い難かった。また、該方法で得られた食品添加剤組成物は、組成物中に含有されるカルボキシル基を有する有機酸のアルカリ金属塩等の含有量が多過ぎるためと思われるが、食品添加剤組成物を食品に添加した場合、苦み、えぐみ等による風味の低下が著しく、食品の価値を大幅に損ねる傾向にあり、風味面においてもあまり好ましい方法とは言えなかった。

## 【0009】

最近、牛乳、ヨーグルト、ジュース類等液体食品の長期間保存可能な容器、保存方法の進歩に伴い、該食品を販売店、自動販売機、家庭内の大型冷蔵庫等において長期間保存するケースが増加しており、同種の食品にカルシウム強化の目的で添加されている炭酸カルシウム粒子は、その食品中における分散状態が極めて良好でない場合、長期間の液体食品の保存の間に食品容器底部に沈澱してしまい、牛乳、ジュース類液体食品を飲用する際、その沈澱物が飲用者に不快感、不清潔感を与えることが多くなっている。

従って、現在カルシウム強化の目的で従来技術で調製された炭酸カルシウム等の無機粒子を添加し市販されている液体食品類は、該無機粒子の食品中における分散安定期間が短いため、該無機粒子の添加量は極少量に制限される必要があり、また、一般消費者が購入後1～2日の間に必ず食用に用いられるような液体食品に制限される必要があるという不都合を有するものであった。

## 【0010】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、かかる実状に鑑み、特に、上記課題を解決した、ヨーグルト、牛乳、ジュース、コーヒーフレッシュ、ミルク粉末、菓子等の食品への添加剤として分散性が極めて良好で、且つ、風味が良好な無機粒子含有添加剤組成物、その製造方法、及び該添加剤組成物を添加してなる食品組成物を提供するものである。

## 【0011】

## 【課題を解決するための手段】

本発明の第1は、下記(a)及び(b)の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤組成物を内容とするものである。

$$(a) \quad 70 \leq X \leq 90000$$

X：無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量 (mg/kg)

$$(b) \quad 0.1 \leq Y \leq 15$$

Y：無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度 (mS/cm)。

## 【0012】

本発明の第2は、下記(I)～(IV)から選ばれた方法により調製された、リン酸カルシウム、リン酸マグネシウム、リン酸鉄から選ばれた少なくとも1種のリン酸化合物を主成分とする多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する組成物からなり、下記(a)及び(b)の要件を具備することを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物を内容とするものである。

(I) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びアルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源を添加する。

(II) 水と多価金属化合物と、リン酸源及びアルカリ金属源、又は、リン酸源・アルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にカルボキシル基を有する有機酸を添加する。

(III) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源・アルカリ金属源を添加する。

(IV) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びリン酸源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にアルカリ金属源を添加する。

(a)  $70 \leq X \leq 90000$

X : 無機粒子含有添加剤組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量 (mg/kg)

(b)  $0.1 \leq Y \leq 15$

Y : 無機粒子含有添加剤組成物を、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 (mS/cm)。

【0013】

本発明の第3は、上述の無機粒子含有添加剤組成物の固形分 100 重量部に対し、乳化安定剤を 2~80 重量部含有させてなる無機粒子含有添加剤組成物を内容とするものである。

【0014】

本発明の第4は、下記 (I) ~ (IV) から選ばれた方法により、少なくとも1種のリン酸化合物を主成分する多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する混合スラリーを調製し、次いで該スラリーを洗浄することを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物の製造方法を内容とするものである。

(I) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びアルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源を添加する。

(II) 水と多価金属化合物と、リン酸源及びアルカリ金属源、又は、リン酸源・アルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にカルボキシル基を有

する有機酸を添加する。

(III) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源・アルカリ金属源を添加する。

(IV) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びリン酸源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にアルカリ金属源を添加する。

【 0 0 1 5 】

本発明の第 5 は、上述の方法で調製した無機粒子含有添加剤組成物の固形分 1 0 0 重量部に対し、乳化安定剤を 2 ～ 8 0 重量部含有させることを特徴とする無機粒子含有添加剤組成物の製造方法を内容とするものである。

【 0 0 1 6 】

本発明の第 6 は、上述の無機粒子含有添加剤組成物を含有してなることを特徴とする食品組成物を内容とするものである。

【 0 0 1 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳述する。以下の記載において、無機粒子含有添加剤スラリー組成物又は無機粒子含有添加剤パウダー組成物を特に区別する必要のない場合は、単に無機粒子含有添加剤組成物と記す。

【 0 0 1 8 】

本発明で用いられる多価金属化合物とは、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化鉄、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化鉄、塩化カルシウム、塩化マグネシウム、塩化鉄、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸鉄、硝酸カルシウム、硝酸マグネシウム、硝酸鉄、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、硫酸鉄、リン酸カルシウム、リン酸マグネシウム、リン酸鉄、ピロリン酸第 2 鉄、ドロマイト等が例示され、これらは単独で又は必要に応じ 2 種以上組み合わせて用いられるが、より分散性の良好な無機粒子含有添加剤組成物を得るためには水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化鉄、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化鉄、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸鉄、ドロマイトから選ばれた少なくとも 1 種であることが好ましい。

【 0 0 1 9 】

本発明で用いられるカルボキシル基を有する有機酸とは、リンゴ酸、コハク酸、クエン酸、アジピン酸、フマル酸、グルタミン酸及びそれらのアルカリ金属塩、多価の金属塩等が例示され、これらは単独で又は必要に応じ2種以上組み合わせて用いられるが、より分散性の良好な無機粒子含有添加剤組成物を得るためには、クエン酸、クエン酸カリウム、クエン酸ナトリウム、クエン酸カルシウム、クエン酸マグネシウム、クエン酸鉄アンモニウム、クエン酸鉄及びクエン酸第1鉄ナトリウムから選ばれた少なくとも1種であることが好ましい。

## 【 0 0 2 0 】

本発明で用いるリン酸源とは、リン酸、縮合リン酸等が例示され、これらは単独で又は必要に応じ2種以上組み合わせて用いられる。縮合リン酸とは、ピロリン酸、トリポリリン酸、テトラポリリン酸、ペンタポリリン酸、ヘキサメタリン酸等が例示され、各々単独でも2種以上組み合わせても使用出来る。

## 【 0 0 2 1 】

本発明で用いられるリン酸源・アルカリ金属源とは、リン酸のアルカリ金属及び／または縮合リン酸のアルカリ金属、もしくは、リン酸及び／または縮合リン酸と、アルカリ金属を指し、より具体的には、リン酸のナトリウム塩及びカリウム塩、縮合リン酸のナトリウム塩及びカリウム塩、リン酸とナトリウム塩及びカリウム塩の混合物、縮合リン酸とナトリウム塩及びカリウム塩の混合物が例示出来、各々単独でも2種以上組み合わせても使用出来る。

## 【 0 0 2 2 】

本発明で用いられるアルカリ金属源とは、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム及び炭酸水素カリウムが例示され、これらは単独で又は必要に応じ2種以上組み合わせても使用出来る。

## 【 0 0 2 3 】

本発明の無機粒子含有添加剤組成物は、スラリー組成物として得られ、これを乾燥粉末化することによりパウダー組成物として得られる。

まず、本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物は、水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸、リン酸源、アルカリ金属源を添加し、スラリー

を調製する。混合方法は、下記 (I)、(II)、(III) 及び (IV) の方法に大別されるが、何れの方法を採用してもよく、また 2 以上を組み合わせ用いても構わない。

(I) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びアルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源を添加する。

(II) 水と多価金属化合物と、リン酸源及びアルカリ金属源、又は、リン酸源・アルカリ金属源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にカルボキシル基を有する有機酸を添加する。

(III) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にリン酸源・アルカリ金属源を添加する。

(IV) 水と多価金属化合物、カルボキシル基を有する有機酸及びリン酸源を混合した前駆物質を作成し、該前駆物質にアルカリ金属源を添加する。

尚、前述の方法の内、より分散性良好なスラリーを得るためには、(III) もしくは (IV) の方法を用いることが好ましい。

#### 【 0 0 2 4 】

本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を得るためには、調製時の各々の成分のモル比が、多価金属イオン：カルボキシル基を有する有機酸イオンは、 $8 : 1 \sim 7 : 1$  の範囲であることが好ましく、より分散性良好な無機粒子含有添加剤組成物を得るためには、 $1.8 : 1 \sim 4 : 1$  の範囲であることがより好ましく、 $1.8 : 1 \sim 2.7 : 1$  の範囲であることが更に好ましい。

カルボキシル基を有する有機酸イオン：リン酸イオンは  $1 : 0.6 \sim 1 : 2.8$  の範囲であることが好ましく、より分散性良好な無機粒子含有添加剤組成物を得るためには、 $1 : 1 \sim 1 : 2.4$  の範囲であることがより好ましく、 $1 : 1.3 \sim 1 : 1.85$  の範囲であることが更に好ましい。カルボキシル基を有する有機酸イオン：アルカリ金属イオンは  $1 : 1 \sim 1 : 8$  の範囲であることが好ましく、より分散性良好な無機粒子含有添加剤組成物を得るためには、 $1 : 1.5 \sim 1 : 5$  の範囲であることがより好ましく、 $1 : 2 \sim 1 : 4$  の範囲であることが更に好ましい。

#### 【 0 0 2 5 】

有機酸に対する多価金属イオンのモル比が0.8未満の場合、分散状態が不安定になり易い傾向にあり好ましくなく、モル比が7を越えた場合、金属イオンがイオン状態で残存し易くなる傾向にあるため、例えば牛乳等に使用した場合、タンパク質の安定性を阻害し易いため、増粘傾向にあり、極端な場合、ゲル化したり、風味の低下を招く傾向にあるため好ましくない。

有機酸に対するリン酸イオンのモル比が0.6未満の場合、分散状態が不安定になる傾向にあり好ましくなく、モル比が2.8を越える場合、無機形態の多価金属の凝集体が出来易い傾向にあり、その場合、例えば牛乳等に使用した場合、容器底部に無機形態の多価金属の凝集体が大量に沈殿してしまうため、好ましくない。

有機酸に対するアルカリ金属イオンのモル比が1未満の場合、分散状態が不安定になり易い傾向にあり好ましくなく、モル比が8を越えた場合、アルカリ性が強くなり過ぎる傾向にあり、強アルカリのものは各種食品に添加した場合、その風味を損ねる傾向にあり好ましくない。

#### 【0026】

本発明の前駆体の調製に関しては、水と多価金属化合物とカルボキシル基を有する有機酸を混合する順序に特に制約はない。また、上述の(III)の方法に関しては、リン酸源・アルカリ金属源の添加方法が、更に下記に示す(a)、(b)、(c)及び(d)の方法に細分されるが、その何れの方法を採用してもよく、また2以上を組み合わせ用いても構わない。

(a) リン酸アルカリ金属及び／または縮合リン酸のアルカリ金属を添加する。

(b) リン酸アルカリ金属及び／または縮合リン酸のアルカリ金属と、アルカリ金属塩を同時に添加する。

(c) リン酸及び／または縮合リン酸と、アルカリ金属塩を同時に添加する。

(d) リン酸アルカリ金属及び／または縮合リン酸のアルカリ金属を添加した後、アルカリ金属塩を添加する。

#### 【0027】

本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を得るための各成分混合時の温度に関しては特に制限はないが、好ましくは、1～70℃の範囲、より好ましくは



、10～40℃の範囲で混合することが、より分散性の良好な無機粒子含有添加剤組成物を得る上で好ましい。また、全ての成分を混合した後、80～230℃の範囲まで加熱することにより、更に長期間の分散安定性が発現し易くなる傾向にあり、更に好ましい。

混合時の液温が70℃を越える場合、液中に粗大粒子が形成され易い傾向にあり、長期間安定な分散性を保つことが困難となるため好ましくなく、液温が1℃未満の場合は溶媒である水が凍結し易くなるため、良好な分散性を有する組成物を得ることが困難な傾向にあるため、好ましくない。

## 【0028】

本発明の無機粒子含有添加剤組成物は、前述の(I)～(IV)から選ばれた方法により調製された、リン酸化合物から選ばれた少なくとも1種を主成分とする多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有したスラリーを洗浄することにより調製されるが、本発明の無機粒子含有添加剤組成物を調製する上で不可欠な要件は、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg)と、無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm)が、下記(a)及び(b)の要件を具備することであり、好ましくは、下記(c)及び(d)の要件を具備することであり、より好ましくは、(e)及び(f)の要件を具備することである。

$$(a) \quad 70 \leq X \leq 90000$$

$$(b) \quad 0.1 \leq Y \leq 15$$

## 【0029】

$$(c) \quad 70 \leq X \leq 39000$$

$$(d) \quad 0.1 \leq Y \leq 7$$

## 【0030】

$$(e) \quad 150 \leq X \leq 10000$$

$$(f) \quad 0.25 \leq Y \leq 1.8$$

## 【0031】

無機粒子含有添加剤スラリー組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量X (

mg/kg) が 70 未満の場合、無機粒子含有添加剤組成物の分散性が低下する傾向にあるため、安定な製品を得られ難いばかりでなく、高濃度にすることが困難となり経済的でなく、一方、X が 90000 を越えた場合、食品に添加した場合、金属臭が強くなる。また、無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) が 0.1 未満の場合、無機粒子含有添加剤組成物が再凝集し易くなり、飲料等に添加した場合、安定な製品を得られ難くなり、一方、Y が 15 を越えた場合、食品に添加した場合、苦み、えぐみ等による風味の低下が著しく、食品の味を大幅に損ねる。

## 【0032】

本発明における無機粒子含有添加剤スラリー組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は、下記の要領で測定計算されたものである。

測定機種 : 島津製作所製 原子吸光光度計 AA-6700F

試料の調製 : 無機粒子含有添加剤スラリー組成物を粉体化したものを約 2 g を採取し、硝酸 3 g で溶解させた後、蒸留水を用いて 100 ml とし、測定試料とする。尚、含有しているアルカリ金属量により、必要に応じて更に希釈しても差し支えない。

溶媒 : 蒸留水

## 【0033】

本発明における無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は、下記の要領で測定計算されたものである。

測定機種 : 横川電気製 電気伝導度計 モデル SC82

試料の調製 : 無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、固形分濃度 10 重量% に調製したものを測定試料とする。

溶媒 : 蒸留水

## 【0034】

尚、本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を洗浄する方法に関しては特に限定はなく、デカンター、クラリファイヤー等の遠心分離機及びロータリーフィルター等のろ布式の洗浄機等が使用できるが、超遠心機等の遠心分離機が洗浄

効率の点で好ましく使用できる。

また、本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を洗浄するタイミングに関しては特に限定はなく、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属とを混合した時点で、水洗してもよく、また、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属とを混合し、更に加熱した後に洗浄してもよいが、より高分散性を有する無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製するためには、後者の方法の方が好ましい。

#### 【0035】

前述の（a）及び（b）の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤スラリー組成物〔以下、無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\alpha$ ）と記す〕は、液中での再分散性及び液中での長期間の保存安定性に極めて優れており、また風味の点でも優れているが、ヨーグルト等の酸性領域の食品への分散安定性、及び、ロングライフ牛乳等、より長期間の分散安定性を達成するためには、無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\alpha$ ）固形分100重量部に対し、乳化安定剤を2～80重量部含有させてなる無機粒子含有添加剤スラリー組成物〔以下、無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\beta$ ）と記す〕を調製することが好ましい。

本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\alpha$ ）固形分100重量部に対する乳化安定剤の含有量が2重量部未満では、無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\beta$ ）を例えば、缶ジュース、ドリンクタイプのヨーグルト等の食品に添加使用した場合、長期間の乳化安定性の保持や酸性領域の食品への分散安定効果が発揮され難い傾向にあるため好ましくなく、一方、80重量部を越えると、製品の粘度が上昇し食感上好ましくない傾向にあるだけでなく、製品の粘度アップに伴い高濃度での製造がハンドリング上困難となり、固形分濃度を落として製造せざるを得ず、経済的な面でも好ましくない。

#### 【0036】

尚、本発明で用いる乳化安定剤とは、ジェランガム、カラギナン、アルギン酸ソーダ、グァーガム、カラヤガム、カルボキシメチルセルロース（以下、CMCと記す）、アルギン酸プロピレングリコールエステル（以下、PGAと記す）、

アラビアガム、タマリンドガム、ガディガム、トラガントガム、キサンタンガム、プルラン、カシアガム、ローカストビーンガム、アラビノガラクトン、スクレロガム、縮合リン酸塩、HLBが8以上のショ糖脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、レシチン、加工デンプン、大豆多糖類が例示され、これらは単独で又は必要に応じ2種以上組み合わせて用いられるが、より長期間の分散安定性を得るためには、HLBが8以上のショ糖脂肪酸エステル、PGA、CMC、アラビアガム、アラビノガラクトン、縮合リン酸塩、ポリグリセリン脂肪酸エステル、レシチン、加工デンプンから選ばれる少なくとも1種であることが好ましい。

## 【0037】

尚、本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物(β)固形分中に含有されるアルカリ金属量X(mg/kg)と、無機粒子含有添加剤スラリー組成物(β)を、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y(mS/cm)は、前述の(a)及び(b)の要件を具備することが好ましく、前述の(c)及び(d)の要件を具備することがより好ましく、(e)及び(f)の要件を具備することが更に好ましい。

また、缶ジュース等、特に長期間の分散安定性の達成を必要とするものには、無機粒子含有添加剤スラリー組成物(α)固形分100重量部に対し、乳化安定剤を2～80重量部を含有させた後、粉碎機及び/または分散機を用いて分散させることがより好ましい。

本発明で用いる粉碎機や分散機については、特に制限はないが、ダイノミル、サンドミル、コボールミル等の湿式粉碎機、超音波分散機、ナノマイザー、マイクロフルイタイザー、アルティマイザー、ホモジナイザー等の乳化・分散機等が好ましく使用できる。

## 【0038】

以上の様にして調製される無機粒子含有添加剤スラリー組成物(α)又は(β)を乾燥粉末化することにより、無機粒子含有添加剤パウダー組成物(α)又は(β)が調製される。無機粒子含有添加剤スラリー組成物(α)又は(β)の乾燥については、洗浄して得られたケーキ状の固形物をそのまま乾燥してもよく、

一旦、水に希釈して再度スラリー化した後に乾燥してもよいが、より再分散性の良い乾燥粉体を得るためには、後者の方法が好ましい。尚、無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ )、( $\beta$ ) の乾燥について、乾燥機に特別の制限はないが、各種表面処理剤の変質防止の観点から極めて短時間に乾燥を行うのが好ましく、この観点から乾燥機としては、スプレードライヤー、セラミック媒体を加熱流動状態で用いるスラリードライヤー等の液滴噴霧型乾燥機もしくは減圧式乾燥機を用いることが望ましい。

## 【0039】

尚、無機粒子含有添加剤パウダー組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) の場合も、X及びYの要件は、前記無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) の場合と同様であり、即ち、Xは無機粒子含有添加剤組成物パウダー中に含有されるアルカリ金属量 ( $\text{mg/kg}$ ) と読替え、また、Yは無機粒子含有添加剤組成物パウダーを、水を溶媒として固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度 ( $\text{mS/cm}$ ) である。

## 【0040】

本発明における無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) の粒度分布における重量平均径K ( $\mu\text{m}$ ) については、下記 ( $\chi$ ) の要件を具備することが好ましく、かなり長期間の保存分散安定性を要求される食品用途には ( $\phi$ ) の要件を具備することがより好ましく、更に好ましくは ( $\omega$ ) の要件を具備することである。

$$(\chi) \quad 0.02 \leq K \leq 0.8$$

$$(\phi) \quad 0.02 \leq K \leq 0.3$$

$$(\omega) \quad 0.02 \leq K \leq 0.1$$

無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) の粒度分布における重量平均径が、 $0.8 \mu\text{m}$  より大きい場合は沈降しやすいため、長期間の保存が必要な用途には使用できない。一方、平均粒子径が小さくなり過ぎると各種ミネラルの溶解性が増大する傾向にあり、例えば牛乳に添加した場合、牛乳のタンパク質等が凝集し易くなる傾向にあるため、 $0.02 \mu\text{m}$  以上が好ましい。

## 【0041】

本発明における無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) 中の各種ミネラルの粒度分布における重量平均径は、下記の要領で測定計算されたものである。

測定機種 : 島津製作所製 S A - C P 4 L

試料の調製 : 無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) ( $\beta$ ) を、下記 2 0 ° C の溶媒中に滴下し、粒度分布測定試料とする。

溶媒 : 蒸留水

予備分散 : U l t r a s o n i c H o m o g e n i z e r ( ( 株 ) 日本精機製) を用い、超音波分散 6 0 秒

測定温度 : 2 0 . 0 ° C  $\pm$  2 . 5 ° C

【 0 0 4 2 】

また、水溶性の無機又は有機酸形態のカルシウムを例えば、牛乳等の食品に添加した場合、可溶性のカルシウムイオンが、牛乳中のタンパク質の安定性を阻害しやすく、一定量以上配合出来ない欠点を有しているのに対し、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、有機酸形態と無機形態を共に有する組成物であるが、無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) 中のカルシウムイオン濃度は極めて低いため、例えば、牛乳等の食品に添加した場合においても、可溶性の無機又は有機酸形態のカルシウムを添加した場合に発生する前述の問題は発生しない。

尚、本発明におけるカルシウムイオン濃度は、下記の要領で測定計算されたものである。

測定機種 : 東亜電波工業製 I O N M E T E R I M - 4 0 S

試料の調製 : 無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) ( $\beta$ ) を 1 0 重量% に調製し、1 0 , 0 0 0 r p m で 1 時間遠心分離を行い、得た上澄み液を測定試料とする。

溶媒 : 蒸留水

【 0 0 4 3 】

本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、水中における再分散性が極めて良好であり、特殊な分散機、攪拌機等を用いずとも容易に水中に分散する。

従って、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を用いて、食品、例えばミネラル強化牛乳を調製するには、本発明の方法により調製される無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を牛乳に直接添加して強力に攪拌し、牛乳中に無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を分散させるだけで充分であるが、該無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を前もって水中に分散させ得られるミネラルの水分散液を牛乳に添加しても差し支えない。また、還元乳では、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を、60℃程度の温度で溶解したバター又はバターオイルに加えて高速攪拌して分散させ、次いでこれに還元脱脂乳あるいは脱脂乳を加え、均質化すればよい。

## 【 0 0 4 4 】

これらの方法で調製したミネラル強化牛乳等は、クラリファイヤーで除去されるミネラルの量が、従来の方法で調製されたミネラルを添加した場合に比べて、大幅に減少する。即ち、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) を添加した牛乳、ヨーグルト、ジュース類中には、ミネラルが極めて安定に保持されている。また、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、ミネラルの分散性が良好であるため、牛乳等に添加する際の攪拌時間が少なく済み、従って、バター中で長時間攪拌した場合に見られるようなミネラルの凝集は起こらない。また、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、牛乳、コーヒーフレッシュ等に多量に添加しても、水溶性カルシウム剤で起こるような独特の味・臭いの発生及び製品のゲル化等が起こらず製品の風味及び食感に影響を及ぼさない。

## 【 0 0 4 5 】

本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、上記用途以外に、クリーム、スープ、コーヒー、紅茶、ウーロン茶、豆乳、スポーツドリンク、ニアーウォーター、等の液体食品、ワイン、酒等のアルコール飲料及びチーズ、ガム、パン、菓子類、麺類等の食品やタブレット等にミネラルの強化の目的で利用することが出来る。

また、本発明の無機粒子含有添加剤組成物 ( $\alpha$ ) 又は ( $\beta$ ) は、乳酸カルシウム、塩化カルシウム、硫酸マグネシウム、塩化マグネシウム、クエン酸鉄ナトリ

ウム、クエン酸鉄アンモニウム等の水溶性の無機形態のミネラル塩と併用しても何等差し支えがない。

【0046】

【実施例】

以下に実施例、比較例を示し本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらにより何ら制限されるものではない。

【0047】

実施例 1

水 1 1 4 2. 9 g と水酸化カルシウム 1 5 5. 4 g、クエン酸（無水） 1 9 2 g 及び 4 0 % リン酸 3 4 3 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。次に該前駆物質に 5 0 % 水酸化カリウム 2 2 4 g を加え、十分に攪拌し、更にオートクレーブを用い 1 2 0 °C で 3 0 分加熱し混合スラリーを得た。

次に該混合スラリーを超遠心機 G L E 型（C E P A 社）を用い脱水した後、該脱水ケーキを再度水に再分散させ、固形分濃度が 3 5 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物（ $\alpha$ ）を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 6 5, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 1 2. 5 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の粒度分布における重量平均径は、0. 1 5  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0048】

実施例 2

水 1 1 4 2. 9 g と水酸化カルシウム 1 5 5. 4 g 及びクエン酸（無水） 1 9 2 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。該前駆物質に 4 0 % リン酸水素 2 カリウ



ム 6 0 9 . 6 g を加え攪拌した後、最後に 5 0 % 水酸化カリウム 5 6 g を加え、十分に攪拌し、更にオートクレーブを用い 1 2 0 °C で 3 0 分加熱し混合スラリーを得た。

次に該混合スラリーを超遠心機を用い脱水した後、該脱水ケーキを再度水に再分散させ、固形分濃度が 3 5 重量% の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 (  $\alpha$  ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2 . 1 : 1 . 0 : 1 . 4 : 3 . 3 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X ( m g / k g ) は 8 8 , 0 0 0 、固形分濃度 1 0 重量% に調製した時の電気伝導度 Y ( m S / c m ) は 1 4 . 3 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0 . 1 4  $\mu$  m 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0 m g / l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【 0 0 4 9 】

### 実施例 3

水 1 1 4 2 . 9 g と水酸化カルシウム 1 5 5 . 4 g 、クエン酸 ( 無水 ) 1 9 2 g 及び 5 0 % 水酸化カリウム 2 2 4 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。次に該前駆物質に 4 0 % リン酸 3 4 3 g を加え、十分に攪拌し、更にオートクレーブを用い 1 2 0 °C で 3 0 分加熱し混合スラリー組成物を得た。

次に該混合スラリーを超遠心機を用い脱水した後、該脱水ケーキを再度水に再分散させ、固形分濃度が 3 5 重量% の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 (  $\alpha$  ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2 . 1 : 1 . 0 : 1 . 4 : 2 . 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X ( m g / k g ) は 5 9 , 0 0 0 、固形分濃度 1 0 重量% に調製した時

の電気伝導度  $Y$  ( $\text{mS}/\text{cm}$ ) は 11.3 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.15\ \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0\ \text{mg}/\text{l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0050】

##### 実施例 4

水 1142.9 g と水酸化カルシウム 155.4 g、50% 水酸化カリウム 224 g 及び 40% リン酸 343 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。次に該前駆物質にクエン酸（無水）192 g を加え、十分に攪拌し、更にオートクレーブを用い  $120^\circ\text{C}$  で 30 分加熱し混合スラリーを得た。

次に該混合スラリーをロータリーフィルターを用い脱水した後、該脱水ケーキを再度水に再分散させ、固形分濃度が 35 重量% の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  ( $\text{mg}/\text{kg}$ ) は 70,000、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度  $Y$  ( $\text{mS}/\text{cm}$ ) は 13.4 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.31\ \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2\ \text{mg}/\text{l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0051】

##### 実施例 5

水 1142.9 g と水酸化カルシウム 155.4 g 及びクエン酸（無水）192 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。該前駆物質に 40% リン酸 3 カリウム 7

43 g を加え、十分に攪拌し混合スラリーを得た。

次に該混合スラリーをロータリーフィルターを用い脱水した後、該脱水ケーキを水に再分散させた後、再度ロータリーフィルターを用い脱水した後、再度水に再分散させ、固形分濃度が35重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 4.2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 35,000、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 6.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.39  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0.5 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0052】

#### 実施例 6

水 1142.9 g と水酸化カルシウム 155.4 g、クエン酸（無水）192 g 及び 40% リン酸 343 g を混合攪拌し前駆物質を作製した。次に該前駆物質に 50% 水酸化カリウム 224 g を加え、十分に攪拌し、混合スラリーを調製した。次に該スラリー組成物を超遠心機を用い脱水した後、該脱水ケーキを再度水に再分散させ、更にオートクレーブを用い、前述のスラリーを 120℃ で 30 分加熱し、固形分濃度が 35 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を得た。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 53,000、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 9.5 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.30\text{ }\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2\text{ mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0053】

##### 実施例 7

水  $1142.9\text{ g}$  と水酸化カルシウム  $155.4\text{ g}$ 、クエン酸（無水） $192\text{ g}$  及び  $40\%$  リン酸  $343\text{ g}$  を混合攪拌し前駆物質を作製した。次に該前駆物質に  $50\%$  水酸化カリウム  $224\text{ g}$  を加え、十分に攪拌し、更にオートクレーブを用い  $120^\circ\text{C}$  で  $30$  分加熱し混合スラリーを得た。

次に該混合スラリーを超遠心機を用い脱水した後、該脱水ケーキを水に再分散させた後、再度超遠心機を用い脱水した後、再度水に再分散させ、固形分濃度が  $35$  重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 =  $2.1 : 1.0 : 1.4 : 2.0$  であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X\text{ (mg/kg)}$  は  $22,000$ 、固形分濃度  $10$  重量%に調製した時の電気伝導度  $Y\text{ (mS/cm)}$  は  $3.5$  であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.12\text{ }\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.5\text{ mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0054】

##### 実施例 8

超遠心機を用い脱水、再分散を  $3$  回繰り返す如く変更することを除き、他は実施例 7 と同様の方法で、固形分濃度が  $35$  重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属＝2.1：1.0：1.4：2.0であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg)は8,300、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm)は1.2であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.13  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0.7 mg/lであった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0055】

#### 実施例9

反応時の各成分のモル比を下記の如く変更することを除き、他は実施例7と同様の方法で、固形分濃度が35重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物( $\alpha$ )を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属＝3.3：1.0：2.7：4.2であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg)は82,000、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm)は13.2であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.30  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0.7 mg/lであった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0056】

#### 実施例10

水酸化カルシウムの代わりに酸化カルシウムを用いることを除き、他は実施例7と同様の方法で、固形分濃度が35重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成

物 (α) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 36,000、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 6.6 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.47 μm、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、1.0 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0057】

#### 実施例 11

水酸化カルシウムの代わりに炭酸カルシウムを用いることを除き、他は実施例 8 と同様の方法で、固形分濃度が 35 重量% の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 (α) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、炭酸カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 9,400、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 1.6 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.13 μm、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0.8 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0058】

#### 実施例 12

水酸化カルシウム 155.4 g の代わりに水酸化カルシウム 81.4 g 及び水

酸化マグネシウム 58.3 g を用いることを除き、他は実施例 7 と同様の方法で、固形分濃度が 35 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：水酸化マグネシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 1.1 : 1.0 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 31,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 5.6 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.28 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.5 \text{ mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

#### 【0059】

##### 実施例 13

水酸化カルシウム 155.4 g の代わりに水酸化カルシウム 151.7 g 及び水酸化第 1 鉄 4.5 g を用いることを除き、他は実施例 7 と同様の方法で、固形分濃度が 35 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：水酸化第 1 鉄：クエン酸：リン酸：水酸化カリウム = 2.05 : 0.05 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 37,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 6.8 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.26 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.9 \text{ mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも

全く問題はなかった。

【0060】

#### 実施例 1 4

50%水酸化カリウム224 gの代わりに50%水酸化カリウム112 g及び50%水酸化ナトリウム80 gを用いることを除き、他は実施例7と同様の方法で、固形分濃度が35重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物( $\alpha$ )を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸：水酸化カリウム：水酸化ナトリウム=2.1 : 1.0 : 1.4 : 1.0 : 1.0であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg)は16,000、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm)は2.7であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0.17  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0.5 mg/lであった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0061】

#### 実施例 1 5

実施例7で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物( $\alpha$ )をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。無機粒子含有添加剤粉体100重量部に対して、ポリグリセリン脂肪酸エステルを20重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が35重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物( $\beta$ )を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg)は18,000、固形分濃度10重量%に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm)は2.9であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布にお



ける重量平均径は、 $0.10\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.4\text{mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、ポリグリセリン脂肪酸エステルはあらかじめ $70^{\circ}\text{C}$ のお湯に溶解して添加した。

#### 【0062】

##### 実施例 16

実施例 7 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。無機粒子含有添加剤粉体 100 重量部に対して、アラビアガム 8 重量部及び水添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 35 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\beta$ ) を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  ( $\text{mg/kg}$ ) は 21,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y$  ( $\text{mS/cm}$ ) は 3.4 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.08\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.3\text{mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、アラビアガムはあらかじめ水に溶解して添加した。

#### 【0063】

##### 実施例 17

実施例 7 で得られた無機粒子添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) 固形分 100 重量部に対して、アルギン酸プロピレングリコールエステル 12 重量部添加し、攪拌混合を行い、固形分濃度が 21 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\beta$ ) を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  ( $\text{mg/kg}$ ) は 20,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y$  ( $\text{mS/cm}$ ) は 3.2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布にお

ける重量平均径は、 $0.11\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2\text{mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、アルギン酸プロピレングリコールエステルはあらかじめ $70^{\circ}\text{C}$ のお湯に溶解して添加した。

【0064】

#### 実施例 18

実施例 1 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。無機粒子含有添加剤粉体 100 重量部に対して、ショ糖脂肪酸エステルを 15 重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 35 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\beta$ ) を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X ( $\text{mg/kg}$ ) は 62, 000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 Y ( $\text{mS/cm}$ ) は 11.6 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.10\mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2\text{mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、シュガーエステルはあらかじめ $70^{\circ}\text{C}$ のお湯に溶解して添加した。

【0065】

#### 実施例 19

実施例 7 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。該無機粒子含有添加剤粉体 100 重量部に対して、アルギン酸プロピレングリコールエステルを 10 重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 30 重量%の混合スラリーを調製後、 $150\text{kg/cm}^2$  の圧力にて高圧ホモジナイザー (A.P.GAULIN社製) を用い、て分散させ、無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\beta$ ) を得た。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  (mg/kg) は 20,000、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度  $Y$  (mS/cm) は 3.2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.04 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.3 \text{ mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、アルギン酸プロピレングリコールエステルはあらかじめ  $70^\circ\text{C}$  のお湯に溶解して添加した。

#### 【0066】

##### 実施例 20

実施例 7 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\alpha$ ) をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。該無機粒子含有添加剤粉体 100 重量部に対して、ポリグリセリン脂肪酸エステルを 20 重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 35 重量% の混合スラリーを調製後、湿式粉碎機ダイノミル KD パイロット型 (WAB 社製) を用いて湿式粉碎を行い、無機粒子含有添加剤スラリー組成物 ( $\beta$ ) を得た。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  (mg/kg) は 18,000、固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度  $Y$  (mS/cm) は 2.9 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.06 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2 \text{ mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリーの粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、ポリグリセリン脂肪酸エステルはあらかじめ  $70^\circ\text{C}$  のお湯に溶解して添加した。

#### 【0067】

##### 比較例 1

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 1 と同

様の方法で、固形分濃度が 2 3 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 1 0 8, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 1 7. 5 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 1 8  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 1 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 6 8】

#### 比較例 2

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 2 と同様の方法で、固形分濃度が 2 3 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 3. 3 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 2 4 8, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 4 0. 2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 1 4  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 2 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 6 9】

#### 比較例 3

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 5 と同様の方法で、固形分濃度が 2 2 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  (mg/kg) は 2 7 5, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y$  (mS/cm) は 4 5. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 1 5  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 6 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 7 0】

#### 比較例 4

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 1 0 と同様の方法で、固形分濃度が 2 3 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X$  (mg/kg) は 1 5 8, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y$  (mS/cm) は 2 4. 7 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 5 1  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 8 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 7 1】

#### 比較例 5

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 1 1 と

同様の方法で、固形分濃度が 2 3 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、炭酸カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 9 8, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 1 6. 3 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 1 6  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 3 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 7 2】

#### 比較例 6

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 1 2 と同様の方法で、固形分濃度が 2 3 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：水酸化マグネシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 1. 1 : 1. 0 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 1 1 1, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 1 7. 9 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、0. 3 1  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、0. 5 mg/l であった。

尚、得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0 0 7 3】

## 比較例 7

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 13 と同様の方法で、固形分濃度が 23 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：水酸化第 1 鉄：クエン酸：リン酸：水酸化カリウム = 2.05 : 0.05 : 1.0 : 1.4 : 2.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 173,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 26.4 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.29\ \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.3\ \text{mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

【0074】

## 比較例 8

超遠心機を用い脱水する以降の工程を行わないことを除き、他は実施例 14 と同様の方法で、固形分濃度が 22 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸：水酸化カリウム：水酸化ナトリウム = 2.1 : 1.0 : 1.4 : 1.0 : 1.0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 107,000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 16.7 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.23\ \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2\ \text{mg/l}$  であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。

## 【 0 0 7 5 】

## 比較例 9

超遠心機を用い脱水、再分散を 1 0 回繰り返す如く変更することを除き、他は実施例 1 と同様の方法で、固形分濃度が 1 5 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 2. 0 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 6 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 0. 1 5 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、1. 2 4  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、2. 7 mg/l であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物は粘性があり、作業性が悪かった。

## 【 0 0 7 6 】

## 比較例 1 0

超遠心機を用い脱水、再分散を 1 2 回繰り返す如く変更することを除き、他は実施例 5 と同様の方法で、固形分濃度が 1 5 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

尚、反応時の各成分のモル比は、水酸化カルシウム：クエン酸：リン酸イオン：アルカリ金属 = 2. 1 : 1. 0 : 1. 4 : 4. 2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量 X (mg/kg) は 9 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度 Y (mS/cm) は 0. 0 8 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、1. 0 9  $\mu$ m、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカル



シウムイオン濃度は、 $2.1 \text{ mg/l}$ であった。

得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物は粘性があり、作業性が悪かった。

# 【 0 0 7 7 】

## 比較例 1 1

比較例 1 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。該無機粒子含有添加剤粉体 1 0 0 重量部に対して、ポリグリセリン脂肪酸エステルを 2 0 重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 3 5 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X \text{ (mg/kg)}$  は 9 5, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y \text{ (mS/cm)}$  は 1 5. 6 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.15 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.2 \text{ mg/l}$ であった。

得られた高濃度無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、ポリグリセリン脂肪酸エステルはあらかじめ  $70^\circ\text{C}$  のお湯に溶解して添加した。

# 【 0 0 7 8 】

## 比較例 1 2

無機粒子含有添加剤粉体 1 0 0 重量部に対して、アラビアガム 8 重量部添加することを除き、他は比較例 1 1 と同様の方法で、固形分濃度が 3 5 重量%の無機粒子含有添加剤スラリー組成物を調製した。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X \text{ (mg/kg)}$  は 1 0 3, 0 0 0、固形分濃度 1 0 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y \text{ (mS/cm)}$  は 1 6. 9 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.11 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカル

シウムイオン濃度は、 $0.2 \text{ mg/l}$ であった。

得られた高濃度無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、アラビアガムはあらかじめ水に溶解して添加した。

#### 【0079】

##### 比較例 13

比較例 1 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物をスプレードライヤーにて乾燥させ、無機粒子含有添加剤粉体を得た。該無機粒子含有添加剤粉体 100 重量部に対して、アルギン酸プロピレングリコールエステルを 10 重量部及び水を添加し攪拌混合を行い、固形分濃度が 35 重量%の混合スラリーを調製後、 $150 \text{ kg/cm}^2$  の圧力にてホモジナイザーを用いて分散させ、無機粒子含有添加剤スラリー組成物を得た。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量  $X (\text{mg/kg})$  は 105, 000、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度  $Y (\text{mS/cm})$  は 17.2 であった。

該無機粒子含有添加剤スラリー組成物中の無機粒子含有添加剤の粒度分布における重量平均径は、 $0.05 \mu\text{m}$ 、該無機粒子含有添加剤スラリー組成物のカルシウムイオン濃度は、 $0.3 \text{ mg/l}$ であった。

得られた高濃度無機粒子含有添加剤スラリー組成物の粘度は十分に低く、流動性にも全く問題はなかった。尚、アルギン酸プロピレングリコールエステルはあらかじめ  $70^\circ\text{C}$  のお湯に溶解して添加した。

#### 【0080】

【表 1】

	多価金属 化合物名 A	有機酸 B	リン酸 源 C	7価金 属化合 物 D	A/B モル比	C/B モル比	D/B モル比	乳化 安定 剤	7価金 属 量X (mg/kg)	電気伝 導度Y (mS/cm)	重量平 均径K ( $\mu$ m)	製造 方法
実施例 1	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	65.000	12.5	0.15	IV
実施例 2	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸2K	KOH	2.1:1	1.4:1	3.3:1	—	88.000	14.3	0.14	III
実施例 3	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	59.000	11.3	0.15	I
実施例 4	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	70.000	13.4	0.31	II
実施例 5	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸3K	—	2.1:1	1.4:1	4.2:1	—	35.000	6.0	0.39	III
実施例 6	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	53.000	9.5	0.30	IV
実施例 7	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	22.000	3.5	0.12	IV
実施例 8	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	8.300	1.2	0.13	IV
実施例 9	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	3.3:1	2.7:1	4.2:1	—	82.000	13.2	0.30	IV
実施例 10	CaO	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	36.000	6.6	0.47	IV
実施例 11	CaCO <sub>3</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	9.400	1.6	0.13	IV
実施例 12	Ca(OH) <sub>2</sub> Mg(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	31.000	5.6	0.28	IV
実施例 13	Ca(OH) <sub>2</sub> Fe(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	37.000	6.8	0.26	IV
実施例 14	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH NaOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	16.000	2.7	0.17	IV
実施例 15	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PG	18.000	2.9	0.10	IV
実施例 16	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	AG	21.000	3.4	0.08	IV
実施例 17	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PGA	20.000	3.2	0.11	IV
実施例 18	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	SE	62.000	11.6	0.10	IV
実施例 19	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PGA	20.000	3.2	0.04	IV
実施例 20	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PG	18.000	2.9	0.06	IV

PG : ポリグリセリン脂肪酸エステル略

AG : アラビアガムの略

PGA : アルギン酸プロピレングリコールエステルの略

SE : ショ糖脂肪酸エステルの略

【0081】

【表 2】

	多価金属 化合物名 A	有機 酸 B	リン酸 源 C	7価金属 化合物 D	A/B モル比	C/B モル比	D/B モル比	乳化 安定 剤	7価金属 量X (mg/kg)	電気伝 導度Y (mS/cm)	重量平 均径K ( $\mu$ m)	製造 方法
比較例 1	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	108.000	17.5	0.18	IV
比較例 2	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸2K	KOH	2.1:1	1.4:1	3.3:1	—	248.000	40.2	0.14	III
比較例 3	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸3K	—	2.1:1	1.4:1	4.2:1	—	275.000	45.0	0.15	III
比較例 4	CaO	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	158.000	24.7	0.51	IV
比較例 5	CaCO <sub>3</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	98.000	16.3	0.16	IV
比較例 6	Ca(OH) <sub>2</sub> Mg(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	111.000	17.9	0.31	IV
比較例 7	Ca(OH) <sub>2</sub> Fe(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	173.000	26.4	0.29	IV
比較例 8	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH NaOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	107.000	16.7	0.23	IV
比較例 9	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	—	60	0.15	1.24	IV
比較例 10	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸3K	—	2.1:1	1.4:1	4.2:1	—	90	0.08	1.09	III
比較例 11	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PG	95.000	15.6	0.15	IV
比較例 12	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	AG	103.000	16.9	0.11	IV
比較例 13	Ca(OH) <sub>2</sub>	クエン酸	リン酸	KOH	2.1:1	1.4:1	2.0:1	PGA	105.000	17.2	0.05	IV

PG : ポリグリセリン脂肪酸エステルの略

AG : アラビアガムの略

PGA : アルギン酸プロピレングリコールエステルの略

## 【0082】

実施例 21～40 及び比較例 14～26

実施例 1～20 及び比較例 1～13 で得られた無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、スプレードライヤーを用いて乾燥し、無機粒子含有添加剤パウダー組成物を得た。

## 【0083】

次に実施例 21～40 で得られた無機粒子含有添加剤パウダー組成物に固形分濃度が 35% になる様に水を添加し、振とう機にて 10 分間振とうし、再分散液を調製した。得られた無機粒子含有添加剤パウダー組成物の再分散液の粘度は、乾燥前の無機粒子含有添加剤スラリー組成物と比較してほぼ同程度で流動性にも全く問題はなかった。該再分散液を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属

量X (mg/kg) と固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm) を表 3 に示す。

【0084】

【表 3】

	X	Y		X	Y		X	Y		X	Y
実施例21	65.000	12.4	実施例22	88.000	14.3	実施例23	59.000	11.5	実施例24	71.000	13.7
実施例25	34.000	6.2	実施例26	54.000	9.7	実施例27	22.000	3.4	実施例28	8.300	1.2
実施例29	84.000	13.3	実施例30	36.000	6.5	実施例31	9.300	1.4	実施例32	32.000	5.7
実施例33	37.000	6.7	実施例34	15.000	2.5	実施例35	18.000	2.9	実施例36	21.000	3.4
実施例37	20.000	3.2	実施例38	62.000	11.4	実施例39	20.000	3.1	実施例40	18.000	3.0

X : アルカリ金属量 (mg/kg)

Y : 電気伝導度 (mS/cm)

【0085】

次に比較例 14 ~ 26 で得られた無機粒子含有添加剤パウダー組成物に固形分濃度が各々パウダー化前のスラリーの固形分濃度と同濃度になる様に水を添加し、振とう機にて 10 分間振とうし、再分散液を調製した。得られた無機粒子含有添加剤パウダー組成物の再分散液の粘度は、乾燥前の無機粒子含有添加剤スラリー組成物と比較してほぼ同程度で流動性にも全く問題はなかった。該再分散液を絶乾した固形分中に含有されるアルカリ金属量X (mg/kg) と固形分濃度 10 重量% に調製した時の電気伝導度Y (mS/cm) を表 4 に示す。

【0086】

【表 4】

	X	Y		X	Y		X	Y
比較例14	107.000	17.7	比較例15	249.000	40.8	比較例16	276.000	45.1
比較例17	157.000	24.6	比較例18	97.000	16.1	比較例19	110.000	17.2
比較例20	172.000	26.1	比較例21	107.000	16.4	比較例22	60	0.14
比較例23	90	0.08	比較例24	94.000	15.3	比較例25	103.000	16.6
比較例26	105.000	17.0						

X : アルカリ金属量 (mg/kg)

Y : 電気伝導度 (mS/cm)

## 【 0 0 8 7 】

## 実施例 4 1

実施例 1 で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物をカルシウム合計量として 32 g になるように量り取り、60℃で溶解させたバター 200 g 中に分散させ、これを脱脂乳 9.55 kg 中に添加攪拌し、次いで殺菌を行いカルシウム強化牛乳を得た。該ミネラル強化牛乳を 100 ml のメスシリンダー数本にとり、5℃で保存し、定期的にメスシリンダー中の牛乳を静かに廃棄し、メスシリンダー底部に残存している沈降物の量の経時変化を目視観察した。その結果を下記の 5 段階表示により表 5 に示す。また、該カルシウム強化牛乳の男女各 10 名よりなる官能試験を行い、各々に風味に関して 5 段階の判定をさせ、その平均値も

表5に示す。

【0088】

「沈澱物の量」

殆ど確認できない	5
わずかに沈澱が確認できる	4
少し沈澱が確認できる	3
かなり沈澱が確認できる	2
大量の沈澱が確認できる	1

【0089】

「風味」

風味が良好である	7
風味が気にならない	6
風味がほとんど気にならない	5
風味が少し気になる（やや違和感がある）	4
風味が悪い（不快感がある）	3
風味がかなり悪い（かなり不快感がある）	2
風味が非常に悪い（非常に不快感が強い）	1

【0090】

実施例42～80、比較例27～52

前述の実施例2～40、比較例1～26で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物又はこれらのパウダー組成物を用いること、及びミネラル含有量の合計重量を実施例41と同濃度に調整することを除き、他は実施例41と同様の方法でミネラル強化牛乳を得た。また、これらのミネラル強化牛乳の沈澱量の観察並びに風味に関する官能試験を、実施例41に示す同様の方法で行った。その結果を表5、6に示す。

【0091】

【表 5】

	使用する無機粒子含有添加剤スラリー組成物、又はそれらのパウダー組成物	沈澱物の量			風味
		3日後	7日後	14日後	
実施例 4 1	実施例 1 による調製品	5	5	5	5
実施例 4 2	実施例 2 による調製品	5	5	5	4
実施例 4 3	実施例 3 による調製品	5	5	5	5
実施例 4 4	実施例 4 による調製品	5	4	4	4
実施例 4 5	実施例 5 による調製品	4	3	3	6
実施例 4 6	実施例 6 による調製品	5	4	4	5
実施例 4 7	実施例 7 による調製品	5	5	5	6
実施例 4 8	実施例 8 による調製品	5	5	4	7
実施例 4 9	実施例 9 による調製品	5	5	4	4
実施例 5 0	実施例 1 0 による調製品	4	3	3	5
実施例 5 1	実施例 1 1 による調製品	5	5	4	7
実施例 5 2	実施例 1 2 による調製品	5	5	4	6
実施例 5 3	実施例 1 3 による調製品	5	5	4	6
実施例 5 4	実施例 1 4 による調製品	5	5	4	6
実施例 5 5	実施例 1 5 による調製品	5	5	5	6
実施例 5 6	実施例 1 6 による調製品	5	5	5	6
実施例 5 7	実施例 1 7 による調製品	5	5	5	6
実施例 5 8	実施例 1 8 による調製品	5	5	5	5
実施例 5 9	実施例 1 9 による調製品	5	5	5	6
実施例 6 0	実施例 2 0 による調製品	5	5	5	6
実施例 6 1	実施例 2 1 による調製品	5	5	5	5
実施例 6 2	実施例 2 2 による調製品	5	5	5	4
実施例 6 3	実施例 2 3 による調製品	5	5	5	5
実施例 6 4	実施例 2 4 による調製品	5	4	4	4
実施例 6 5	実施例 2 5 による調製品	4	3	3	6
実施例 6 6	実施例 2 6 による調製品	5	4	4	5
実施例 6 7	実施例 2 7 による調製品	5	5	5	6
実施例 6 8	実施例 2 8 による調製品	5	5	4	7
実施例 6 9	実施例 2 9 による調製品	5	5	4	4
実施例 7 0	実施例 3 0 による調製品	4	3	3	5
実施例 7 1	実施例 3 1 による調製品	5	5	4	7
実施例 7 2	実施例 3 2 による調製品	5	5	4	6
実施例 7 3	実施例 3 3 による調製品	5	5	4	6
実施例 7 4	実施例 3 4 による調製品	5	5	4	6
実施例 7 5	実施例 3 5 による調製品	5	5	5	6
実施例 7 6	実施例 3 6 による調製品	5	5	5	6
実施例 7 7	実施例 3 7 による調製品	5	5	5	6
実施例 7 8	実施例 3 8 による調製品	5	5	5	5
実施例 7 9	実施例 3 9 による調製品	5	5	5	6
実施例 8 0	実施例 4 0 による調製品	5	5	5	6

【0092】



【表 6】

	使用する無機粒子含有添加剤スラリー組成物、又はそれらのパウダー組成物	沈澱物の量			風味
		3 日後	7 日後	14 日後	
比較例 2 7	比較例 1 による調製品	5	5	5	3
比較例 2 8	比較例 2 による調製品	5	5	5	1
比較例 2 9	比較例 3 による調製品	5	5	5	1
比較例 3 0	比較例 4 による調製品	4	3	3	2
比較例 3 1	比較例 5 による調製品	5	5	4	3
比較例 3 2	比較例 6 による調製品	4	4	4	3
比較例 3 3	比較例 7 による調製品	5	4	4	2
比較例 3 4	比較例 8 による調製品	5	5	4	3
比較例 3 5	比較例 9 による調製品	2	1	1	4
比較例 3 6	比較例 1 0 による調製品	2	1	1	4
比較例 3 7	比較例 1 1 による調製品	5	5	5	3
比較例 3 8	比較例 1 2 による調製品	5	5	5	3
比較例 3 9	比較例 1 3 による調製品	5	5	5	3
比較例 4 0	比較例 1 4 による調製品	5	5	5	3
比較例 4 1	比較例 1 5 による調製品	5	5	5	1
比較例 4 2	比較例 1 6 による調製品	5	5	5	1
比較例 4 3	比較例 1 7 による調製品	4	3	3	2
比較例 4 4	比較例 1 8 による調製品	5	5	4	3
比較例 4 5	比較例 1 9 による調製品	4	4	4	3
比較例 4 6	比較例 2 0 による調製品	5	4	4	2
比較例 4 7	比較例 2 1 による調製品	5	5	4	3
比較例 4 8	比較例 2 2 による調製品	2	1	1	4
比較例 4 9	比較例 2 3 による調製品	2	1	1	4
比較例 5 0	比較例 2 4 による調製品	5	5	5	3
比較例 5 1	比較例 2 5 による調製品	5	5	5	3
比較例 5 2	比較例 2 6 による調製品	5	5	5	3

【 0 0 9 3 】

実施例 8 1

実施例 2 で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物をカルシウム量として 3 2 g になるように量り取り、市販の牛乳 2 . 5 kg、バター 1 0 0 g、脱脂乳 1 . 4 5 k g、を水 5 k g に添加攪拌して均質化し、常法に則り、殺菌冷却した後、あらかじめ調整したスターター 2 0 0 g 接種し、3 8 ℃で 5 時間発酵させた後、攪拌・均質化を行い、ドリンクタイプのカルシウム強化ヨーグルトを得た。

該ヨーグルトの官能試験を実施例 4 1 と同様の方法で行った。その結果を表 7 に示す。

## 【 0 0 9 4 】

実施例 8 2 ~ 8 4、比較例 5 3 ~ 5 5

前述の実施例 1 5、2 7、4 0 及び比較例 1、1 3、2 4 で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物又はこれらのパウダー組成物を用いること、及びミネラル含有量の合計重量を実施例 8 1 と同濃度に調整することを除き、他は実施例 8 1 と同様の方法でミネラル強化ヨーグルトを得た。また、これらのミネラル強化ヨーグルトの沈澱量の観察並びに風味に関する官能試験を、実施例 4 1 に示す同様の方法で行った。その結果を表 7 に示す。

## 【 0 0 9 5 】

【表 7】

	使用する無機粒子含有添加剤スラリー組成物、又はそれらのパウダー組成物	沈澱物の量			風味
		3 日後	7 日後	14 日後	
実施例 8 1	実施例 2 による調製品	4	3	3	4
実施例 8 2	実施例 1 5 による調製品	5	5	5	6
実施例 8 3	実施例 2 7 による調製品	4	3	2	5
実施例 8 4	実施例 4 0 による調製品	5	5	5	6
比較例 5 3	比較例 1 による調製品	4	3	2	2
比較例 5 4	比較例 1 3 による調製品	5	5	4	3
比較例 5 5	比較例 2 4 による調製品	5	5	4	3

## 【0 0 9 6】

## 実施例 8 5

焙煎、粉碎したコーヒー豆を抽出して、コーヒー液を抽出し、コーヒー抽出液を得た。該コーヒー抽出液に 8 k g に砂糖 2 2 0 g、牛乳 2 k g 並びに実施例 2 で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物をカルシウム量として 6 4 g になるように量り取り、混合攪拌し、更に水を加え、全量を 2 0 k g とし更に攪拌を行った。その後、重曹を加え p H を 6 . 7 に調製後、均質化し、調合液を得た。該調合液を缶に充填した後、1 2 3 ℃ にて 2 0 分間レトルト殺菌を行い、カルシウム強化コーヒー缶飲料を得た。

該コーヒー缶飲料の官能試験を実施例 4 1 と同様の方法で行った。その結果を表 8 に示す。

## 【0 0 9 7】

## 実施例 8 6 ~ 9 4、比較例 5 6 ~ 6 1

実施例 1 0、1 6、1 7、2 0、2 8、3 0、3 5、3 8、3 9 及び比較例 2

、11、12、14、22、26で調製した無機粒子含有添加剤スラリー組成物又はこれらのパウダー組成物を用いること、及びミネラル含有量の合計重量を実施例85と同濃度に調整することを除き、他は実施例85と同様の方法でミネラル強化コーヒ缶飲料を得た。また、これらのミネラル強化コーヒ缶飲料の沈澱量の観察並びに風味に関する官能試験を、実施例41に示す同様の方法で行った。その結果を表8に示す。

【0098】

【表8】

	使用する無機粒子含有添加剤スラリー組成物、又はそれらのパウダー組成物	沈澱物の量			風味
		30日後	60日後	90日後	
実施例85	実施例2による調製品	4	3	2	4
実施例86	実施例10による調製品	3	3	2	5
実施例87	実施例16による調製品	5	5	4	6
実施例88	実施例17による調製品	5	5	4	6
実施例89	実施例20による調製品	5	5	5	6
実施例90	実施例28による調製品	4	3	2	6
実施例91	実施例35による調製品	5	5	4	6
実施例92	実施例38による調製品	5	5	4	5
実施例93	実施例39による調製品	5	5	5	6
比較例56	比較例2による調製品	4	3	2	1
比較例57	比較例11による調製品	5	4	4	3
比較例58	比較例12による調製品	5	4	4	2
比較例59	比較例14による調製品	3	3	2	2
比較例60	比較例22による調製品	1	1	1	3
比較例61	比較例26による調製品	5	5	4	3

【0099】

【発明の効果】

以上のように、本発明の無機粒子含有添加剤スラリー組成物、及びそれらのパウダー組成物は、特に、液中での再分散性、液中での長期間の保存安定性が極めて優れているだけでなく、食品で最も重要なファクターの1つである風味も極めて優れている。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 食品に添加された場合に、液中での分散性及び保存安定性に優れるとともに、風味にも優れた無機粒子含有添加剤スラリー又はパウダー組成物を提供する。

【解決手段】 下記 (a) 及び (b) の要件を具備する、多価金属、リン酸イオン、カルボキシル基を有する有機酸並びにアルカリ金属を含有する無機粒子含有添加剤スラリー組成物。

(a)  $70 \leq X \leq 90000$

X : 無機粒子含有添加剤スラリー組成物固形分中に含有されるアルカリ金属量  
(mg/kg)

(b)  $0.1 \leq Y \leq 15$

Y : 無機粒子含有添加剤スラリー組成物を、固形分濃度 10 重量%に調製した時の電気伝導度 (mS/cm)。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [390008442]

1. 変更年月日 1990年 8月29日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 兵庫県明石市魚住町西岡1455番地  
氏 名 丸尾カルシウム株式会社